

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Masayuki IKENO, et al.

GAU:

SERIAL NO: NEW APPLICATION

EXAMINER:

FILED: HEREWITH

FOR: ORGANOPOLYSILOXANE COMPOSITION FOR MOLDING

REQUEST FOR PRIORITY

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS  
WASHINGTON, D.C. 20231

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number \_\_\_\_\_, filed \_\_\_\_\_, is claimed pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §120**.
- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number \_\_\_\_\_, filed \_\_\_\_\_, is claimed pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §119(e)**.
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §119**, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

COUNTRY

APPLICATION NUMBER

MONTH/DAY/YEAR

Japan

2000-384154

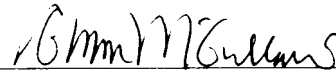
December 18, 2000

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. \_\_\_\_\_ filed \_\_\_\_\_
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number \_\_\_\_\_  
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT IB 304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. \_\_\_\_\_ filed \_\_\_\_\_; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s)
- ☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon

Registration No. 24,618



22850

Tel: (703) 413-3000  
Fax: (703) 413-2220  
(OSMMN 10/98)

jc997 U.S. PTO  
10/020219  
12/18/01

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

JC997 U.S. PTO  
10/020219  
12/18/01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年12月18日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-384154

出 願 人

Applicant(s):

信越化学工業株式会社

2001年 8月24日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及 川 耕 造

出証番号 出証特2001-3075966

【書類名】 特許願

【整理番号】 P011261-0

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B29C 39/00

【発明者】

【住所又は居所】 群馬県碓氷郡松井田町大字人見 1 番地 1 0 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内

【氏名】 池野 正行

【発明者】

【住所又は居所】 群馬県碓氷郡松井田町大字人見 1 番地 1 0 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内

【氏名】 荒川 雅弥

【発明者】

【住所又は居所】 群馬県碓氷郡松井田町大字人見 1 番地 1 0 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内

【氏名】 田中 耕一

【特許出願人】

【識別番号】 000002060

【住所又は居所】 東京都千代田区大手町二丁目 6 番 1 号

【氏名又は名称】 信越化学工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100084308

【住所又は居所】 東京都千代田区神田小川町 3 - 6 日本分譲住宅会館ビル 岩見谷国際特許事務所

【弁理士】

【氏名又は名称】 岩見谷 周志

【電話番号】 03-3219-6741

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 043579

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9102447

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 型取り用オルガノポリシロキサン組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(A) 一分子中にケイ素原子に結合したアルケニル基を少なくとも 2 個有し、25℃における粘度が 0.05～100Pa・s であるオルガノポリシロキサン 100 重量部、

(B) 両末端にケイ素原子に結合した水素原子を有し、分子中に脂肪族不飽和結合を有しない、25℃における粘度が 0.001～1.0Pa・s である直鎖状オルガノポリシロキサン、

(C) 1 分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも 3 個有し、 $\text{RHSiO}$  単位、及び  $\text{R}_2\text{XSio}_{1/2}$  単位 [式中、R はアルケニル基を有しない非置換又は置換の一価炭化水素基であり、X は水素原子もしくは R を表す。] を分子中に必須に含有する、25℃における粘度が 0.001～1.0Pa・s であるオルガノハイドロジェンポリシロキサン、

(D) ヒドロシリル化反応触媒 有効量、

(E) 比表面積が  $50\text{m}^2/\text{g}$  以上の微粉末シリカ 50 重量部以下、及び

(F) 25℃における粘度が 0.01～500Pa・s である非官能性オルガノポリシロキサン 0～20 重量部を含有してなり、

前記 (B) 成分と (C) 成分中に存在するケイ素原子に結合した水素原子の合計量が、前記 (A) 成分中のアルケニル基 1 個当たり 1～5 個であり、(B) 成分中のケイ素原子に結合した水素原子の数が、(B) 成分と (C) 成分中のケイ素原子に結合した水素原子の合計に対して 20～70 モル% である、

ことを特徴とする型取り用オルガノポリシロキサン組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、型取り用の反転母型として有効に使用され、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、ポリエステル樹脂等に対する離型性に優れ

た型取り用オルガノポリシロキサン組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来より、型取り用の反転母型として、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、ポリエステル樹脂等の複製品を製造することは公知の技術であるが、最近ではこのようにして得られた樹脂成形物が、自動車用部品、家電用部品として実際に使用に供されており、樹脂成形物の特性が重視されるようになってきている。このため、注型樹脂の特性改良は目覚ましいものがあるが、この改良はシリコーンゴム母型の耐久性を低下させる要因となっており、一つの型から作製できる複製品の個数が少なくなっている。そのためこれらの樹脂に対するシリコーンゴム母型の離型耐久性の向上が強く要望されている。

【0003】

特開平4-216864号公報には、シリコーン組成物にアルカリ金属水酸化物を添加すると、離型耐久性が向上することが開示されており、特開平5-279571号公報には、離型性向上のために有機錫化合物、有機チタン化合物及びイミダゾール誘導体から選択される化合物を含有する組成物が開示されている。特開平11-158385号公報にはラジカル脱除剤を使用したポリエステル型取り耐久性向上技術が開示されている。しかしながらこれらの対応でもまだ型取り耐久性は充分満足できるものではなかった。なお、特開平11-158385号公報には、多官能架橋剤と2官能架橋剤を使用した組成例が示されている。しかし、記述内容からは全架橋剤中の2官能性架橋剤の割合を知ることはできずまた架橋剤として多官能性と2官能性の鎖長延長剤を組み合わせることが離型耐久性に優れると云うことは何ら示されていない。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、ポリエステル樹脂等に対する離型性に優れた型取り用オルガノポリシロキサン組成物を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明は、オルガノポリシロキサン組成物において、鎖長延長剤として多官能性架橋剤と2官能性架橋剤を組み合わせ、かつ2官能性架橋剤中のSiH基が全架橋剤中のSiH基に占める割合を20～70モル%にすることで、組成物がその目的に適合することを見出し、本発明を完成するに至った。

【0006】

すなわち、本発明は、

(A)一分子中にケイ素原子に結合したアルケニル基を少なくとも2個有し、25℃における粘度が0.05～100Pa・sであるオルガノポリシロキサン 100重量部、

(B)両末端にケイ素原子に結合した水素原子を有し、分子中に脂肪族不飽和結合を有しない、25℃における粘度が0.001～1.0Pa・sである直鎖状オルガノポリシロキサン、

(C)1分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも3個有し、実質的にRHSiO単位、及び $R_2XSiO_{1/2}$ 単位[式中、Rはアルケニル基を有しない非置換又は置換の一価炭化水素基であり、Xは水素原子もしくはRを表す。]を分子中に必須に含有する、25℃における粘度が0.001～1.0Pa・sであるオルガノハイドロジェンポリシロキサン、

(D)ヒドロシリル化反応触媒 有効量、

(E)比表面積が $50m^2/g$ 以上の微粉末シリカ 50重量部以下、及び

(F)25℃における粘度が0.01～500Pa・sである非官能性オルガノポリシロキサン 0～20重量部  
を含有してなり、

前記(B)成分と(C)成分中に存在するケイ素原子に結合した水素原子の合計量が、前記(A)成分中のアルケニル基1個当たり1～5個であり、(B)成分中のケイ素原子に結合した水素原子の数が、(B)成分と(C)成分中のケイ素原子に結合した水素原子の合計に対して20～70モル%である、

ことを特徴とする型取り用オルガノポリシロキサン組成物を提供する。

【0007】

【発明の実施の形態】

## 〔(A)成分〕

本発明において、(A)成分は、一分子中に少なくとも2個のケイ素原子に結合したアルケニル基を含有するオルガノポリシロキサンである。(A)成分中のアルケニル基として具体的には、ビニル基、アリル基、プロペニル基、イソプロペニル基、ブテニル基、イソブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基が例示され、好ましくはビニル基である。(A)成分中のアルケニル基の結合位置は特に限定されず、分子鎖末端及び／又は分子鎖側鎖である。また、(A)成分中のケイ素原子に結合したアルケニル基以外の有機基として具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等のアルキル基；シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基；3,3,3-トリフロロプロピル基、3-クロロプロピル基等のハロゲン置換アルキル基等の、通常、炭素数1~10、好ましくは炭素数1~8の、非置換又は置換の1価炭化水素基が例示され、合成が容易なことから、メチル基であることが好ましい。

## 【0008】

(A)成分の粘度は25℃において、0.05~100Pa・s、好ましくは0.1~30Pa・sの範囲から選ばれる。(A)成分のオルガノポリシロキサンのシロキサン骨格は、直鎖状でも分岐状でもよく、また両者の混合物でもよいが、主鎖がジオルガノシロキサン単位の繰り返しから成り、分子鎖両末端がトリオルガノシロキシ基で封鎖された、実質的に直鎖状のジオルガノポリシロキサンであることが好ましい。

## 【0009】

## 〔(B)成分〕

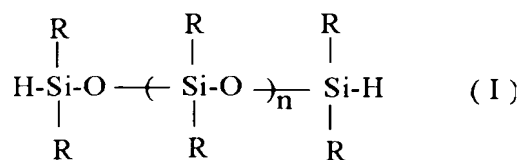
本発明に用いられる(B)成分は、分子鎖両末端にケイ素原子に結合した水素原子（即ち、SiH基）を有し、分子中に脂肪族不飽和結合を有しない、分子中に2個のSiH基を含有する直鎖状のオルガノポリシロキサンであり、25℃での粘度が0.001~1.0Pa・s、好ましくは0.01~0.1Pa・sの範囲である。この直鎖状オルガノポリシロキサンは、硬化に際して前記(A)成分の分子鎖長を増加させる働きをし、型取り耐久性に大きく影響する成分である。



このオルガノポリシロキサンは、例えば、下記一般式 (I) :

【0010】

【化1】



[式中Rはアルケニル基を含有しない非置換又は置換の1価の炭化水素基であり、nは当該オルガノポリシロキサンの25℃における粘度が上記の範囲となるような数である。]

で表される。

【0011】

一般 (I) において、Rはアルケニル基を含有しない非置換又は置換の1価の炭化水素基であり、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等のアルキル基；シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基；3,3,3-トリフロロプロピル基、3-クロロプロピル基等のハロゲン置換アルキル基等の、通常、炭素数1~10、好ましくは炭素数1~8程度のものが挙げられる。nはこのオルガノポリシロキサンの25℃における粘度が上記の通り0.001~1.0Pa・s、好ましくは0.01~0.1Pa・sになるような数である。

【0012】

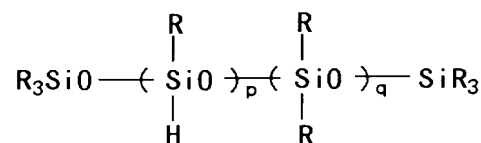
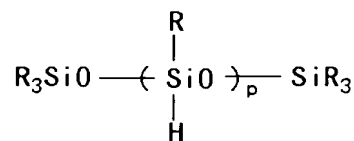
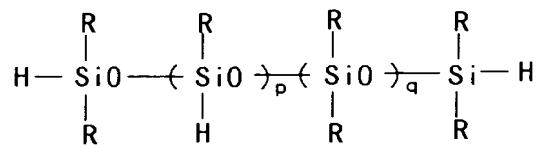
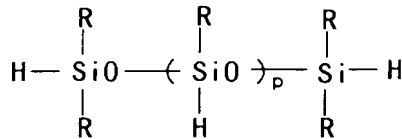
[(C)成分]

本発明において、(C)成分は1分子中に少なくとも3個のケイ素原子に結合した水素原子 (SiH基) を有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンである。ケイ素原子に結合した水素原子は末端シロキサン単位並びにポリマー鎖中のシロキサン単位に位置することができ、またシロキサン鎖内だけに位置していてもよい。このオルガノハイドロジェンポリシロキサンは線状シロキサンポリマーであり、一般式RHSiO基、及びR<sub>2</sub>XSiO<sub>1/2</sub>基の単位を分子中に必須に含有し、R<sub>2</sub>SiO基の

単位を任意に含有してもよいものであり、例えば、下記のものを例示することができる。

【 0 0 1 3 】

【化 2】



[上記式中、Rは前記と同じ意味を示し、p、qはそれぞれ1以上の整数であり、p、p+qは上記粘度を満足する値である。]

【 0 0 1 4 】

これら式中、Rは一般式(I)において述べたアルケニル基を含有しない、通常、炭素数1~10、好ましくは炭素数1~8程度の、非置換又は置換の1価の炭化水素基と同じであり、XはH又は前記と同じRを表す。(C)成分のオルガノヒドロジェンポリシロキサンの25℃における粘度は0.001~1.0Pa・s、好ましくは0.01~0.1Pa・sである。

【 0 0 1 5 】

ここで、前記(B)成分と(C)成分中に存在するケイ素原子に結合した水素原子(即ち、SiH基)の合計量は、前記(A)成分中のアルケニル基1個当たり、1~5個であり、好ましくは1~3個である。また(B)成分中のケイ素原子に結合した水素原

子の数は、(B)成分と(C)成分中のケイ素原子に結合した水素原子の合計に対して20～70モル%であり、好ましくは30～60モル%である。

## 【0016】

## [(D)成分]

本発明において、(D)成分であるヒドロシリル化反応触媒は前記(A)成分中のアルケニル基と、(B)及び(C)成分中のSiH基との付加反応（ヒドロシリレーション）を促進するものであればいかなる触媒を使用してもよく、そのようなものとして通常使用される触媒はいずれも使用することができる。例えば、白金系触媒、パラジウム系触媒及びロジウム系触媒から選ばれる少なくとも1種の触媒が用いられ、より具体的には、例えば、塩化白金酸、アルコール変性塩化白金酸、塩化白金酸とオレフィン類、ビニルシロキサン又はアセチレン化合物との配位化合物、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム、クロロトリス(トリフェニルホスフィン)ロジウム等が使用され、特に好ましくは白金系化合物である。(D)成分は触媒として有効量（いわゆる触媒量）であればよく、具体的には、例えば前記(A)、(B)及び(C)成分の合計量に対して触媒の量（金属元素分として）が重量換算で0.01～500ppm、好ましくは0.1～100ppm程度の割合で配合される。

## 【0017】

## [(E)成分]

本発明において、(E)成分の微粉末シリカは補強材として作用する。すなわち、本発明の組成物は特に型取り材料として使用され、その硬化物は母型として種々の形状に型取りされる。したがって、その硬化物は逆テーパ形状を有する母型を形成することもあり、このような場合には特に引き裂き強度などの強度特性が要求され、本発明の組成物においては、微粉末シリカを補強材として使用することにより、このような強度特性を満足する硬化物を形成することが可能となる。かかる微粉末シリカは、BET法で測定した比表面積が $50\text{m}^2/\text{g}$ 以上であることが必要であり、好ましくは $100\sim 300\text{m}^2/\text{g}$ である。比表面積が $50\text{m}^2/\text{g}$ 未満では、満足するような強度特性を付与することができない。

## 【0018】

このような微粉末シリカとしては、比表面積が上記範囲内であることを条件と

して、例えばヒュームドシリカ等の乾式シリカや、湿式シリカ等の合成シリカが使用される。これらのシリカは表面に多量のシラノール基を有しているために、例えばハロゲン化シラン、アルコキシシラン、各種シラザン化合物などにより表面処理されたいわゆる処理シリカとして使用することもできる。またこの微粉末シリカの配合量は、前記(A)成分のオルガノポリシロキサン100重量部当たり50重量部以下、好ましくは10~40重量部であり、かかる範囲内において、適当な強度が得られるように、適宜配合される。この配合量が(A)成分100重量部に対して50重量部を超えると、組成物の作業性が損なわれる。

## 【 0 0 1 9 】

## 〔(F)成分〕

本発明において、(F)成分は、必要に応じて使用され、本組成物の内部離型剤として作用するもので、好ましくは直鎖状の、非官能性オルガノポリシロキサンである。このオルガノポリシロキサンがアルケニル基やヒドロシリル基（SiH基）等の付加反応性官能基を有していると、硬化ゴム中に固定化され、剥離力の低減効果をもたらさない。したがって、非官能性オルガノポリシロキサンのケイ素原子に結合した置換基としては、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基、フェニル基、トリル基等のアリール基、3,3,3-トリフロロプロピル基、3-クロロプロピル基等のハロ置換アルキル基等の基が挙げられる。非官能性オルガノポリシロキサンの25℃における粘度は0.01~500Pa・s、好ましくは0.03~100Pa・sである。この成分の配合量は(A)成分100重量部に対して0~20重量部であり、好ましくは5~10重量部である。(F)成分の配合量が、(A)成分100重量部に対して、20部より多いとオイルの滲みが多くなり、樹脂複製物へのシリコーンの移行が多くなる場合がある。

## 【 0 0 2 0 】

## (その他の成分)

本発明の組成物には、上記の成分以外に、離型耐久性を向上させるという本発明の効果を損なわない範囲において、それ自体公知の配合剤を添加することができる。このようなものとして、例えば、 $\text{SiO}_2$ 単位又は $\text{R}^1\text{SiO}_{3/2}$ 単位を含有し、1分子中に少なくとも2個のアルケニル基を有するオルガノポリシロキサン樹脂が

挙げられる。また、反応制御剤も用いられ、このようなものとしては付加反応を制御するものであれば従来公知のものが使用でき、3-メチル-1-ブチン-3-オール、3,5-ジメチル-1-ヘキシル-3-オール、フェニルブチノール等のアセチレン系化合物；1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン、1,3-ジビニル-テトラメチルジシロキサン等のアルケニルシロキサン；ベンゾトリアゾール等のトリアゾール化合物；その他、フォスフィン化合物、メルカプト化合物等を微量又は少量添加することができる。その他、コバルトブルーなどの無機顔料；有機染料などの着色剤；酸化セリウム、炭酸亜鉛、炭酸マンガ、ベンガラ、酸化チタン、カーボンブラックなどの耐熱性、難燃性向上剤等の配合も可能である。

## 【 0 0 2 1 】

## 【実施例】

以下、本発明を実施例にて具体的に説明するが、本発明はこれら実施例になんら限定されない。

## 【 0 0 2 2 】

## 実施例 1

(a)分子鎖両末端がビニルジメチルシリル基で封鎖された25℃の粘度が約1Pa・sのジメチルポリシロキサン35重量部、(a')分子鎖両末端がビニルジメチルシリル基で封鎖された25℃の粘度が約0.4Pa・sのジメチルポリシロキサン30重量部、トリメチルシリル基で処理された比表面積120m<sup>2</sup>/gの疎水性シリカ20重量部及び平均粒子径5μmの石英粉25重量部をニーダー中に投入し、よく攪拌しながらヘキサメチレンジシラザン5重量部と水2.5重量部を添加し、加熱を行わずに1時間混合を行った。この後、温度を150℃に昇温し、引き続き2時間混合を行った後、室温まで降温した。このようにして得られた混合物100重量部に、(b)25℃における粘度が0.018Pa・sの分子鎖両末端にケイ素原子に結合した水素原子(SiH基)を有するジメチルポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量=0.13重量%)4.0重量部、(c)25℃における粘度が0.015Pa・sの分子鎖側鎖にケイ素原子に結合した水素原子を有するメチルヒドロジエンポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量=0.38重量%)2.3重量部、分子鎖両末端がトリメチルシリル基で封鎖

された25℃の粘度が約100Pa・sのジメチルポリシロキサン4重量部、塩化白金酸とジビニルトトラメチルジシロキサンの錯体を白金金属として前記(a)、(a')、(b)及び(c)成分の合計量に対して30ppm、制御剤として1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン0.1重量部を添加し、よく攪拌した後、真空下で脱泡を行い、60℃で2時間かけて硬化させ、JIS K 6249に従ってシートを作製し、一般物性を測定した。

## 【 0 0 2 3 】

また同様にして、凹状の母型を形成し、この凹状部にウレタン樹脂(H&K社製3017)を注型し、70℃で1時間かけてウレタン樹脂の硬化を行い、型取りを行った。この型取りを繰り返し行い、ウレタン樹脂がシリコーン型に接着するまで、型取り耐久性を評価した。一般物性、型取り耐久性結果を表1に示した。

## 【 0 0 2 4 】

## 実施例 2

(a)分子鎖両末端がビニルジメチルシリル基で封鎖された25℃の粘度が約1Pa・sのジメチルポリシロキサン65重量部、トリメチルシリル基で処理された比表面積 $120\text{m}^2/\text{g}$ の疎水性シリカ20重量部及び平均粒子径 $5\mu\text{m}$ の石英粉35重量部をニーダー中に投入し、よく攪拌しながらヘキサメチレンジシラザン5重量部と水2.5重量部を添加し、加熱を行わずに1時間混合を行った。この後、温度を150℃に昇温し、引き続き2時間混合を行った後、室温まで降温した。このようにして得られた混合物100重量部に、(b)25℃における粘度が0.018Pa・sの分子鎖両末端にケイ素原子に結合した水素原子を有するジメチルポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量=0.13重量%)3.5重量部、(c)25℃における粘度が0.15Pa・sの分子鎖側鎖にケイ素原子に結合した水素原子を有するメチルヒドロジェンポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量=0.38重量%)1.4重量部、分子鎖両末端がトリメチルシリル基で封鎖された25℃の粘度が約100Pa・sのジメチルポリシロキサン5重量部、塩化白金酸とジビニルトトラメチルジシロキサンの錯体を白金金属として前記(a)、(b)及び(c)成分の合計量に対して30ppm、制御剤として1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン0.1重量部を添加し、よく攪拌した後、真空下で脱泡を行い、60℃で2時間かけて硬化させ

、JIS K 6249に従ってシートを作製し、一般物性を測定した。また実施例 1 と同様に型取り耐久性を評価し、その結果を表 1 に示した。

# 【 0 0 2 5 】

## 実施例 3

(a)分子鎖両末端がビニルジメチルシリル基で封鎖された25℃の粘度が約1Pa・sのジメチルポリシロキサン65重量部、トリメチルシリル基で処理された比表面積 $120\text{m}^2/\text{g}$ の疎水性シリカ20重量部及び平均粒子径 $5\mu\text{m}$ の石英粉35重量部をニーダー中に投入し、よく攪拌しながらヘキサメチレンジシラザン5重量部と水2.5重量部を添加し、加熱を行わずに1時間混合を行った。この後、温度を150℃に昇温し、引き続き2時間混合を行った後、室温まで降温した。このようにして得られた混合物100重量部に、(b)25℃における粘度が0.04Pa・sの分子鎖両末端にケイ素原子に結合した水素原子を有するジメチルポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量=0.07重量%)6.9重量部、(c)25℃における粘度が0.15Pa・sの分子鎖側鎖にケイ素原子に結合した水素原子を有するメチルヒドロジェンポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量=0.38重量%)1.3重量部、塩化白金酸とジビニルテトラメチルジシロキサンの錯体を白金金属として前記(a)、(b)及び(c)成分の合計量に対して30ppm、制卸剤として1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン0.1重量部を添加し、よく攪拌した後、真空下で脱泡を行い、60℃で2時間かけて硬化させ、JIS K 6249に従ってシートを作製し、一般物性を測定した。

また実施例 1 と同様に型取り耐久性を評価し、その結果を表 1 に示した。

# 【 0 0 2 6 】

## 実施例 4

(a)分子鎖両末端がビニルジメチルシリル基で封鎖された25℃の粘度が約1Pa・sのジメチルポリシロキサン65重量部、比表面積が約 $200\text{m}^2/\text{g}$ である乾式シリカ20重量部及び平均粒子径 $5\mu\text{m}$ の石英粉35重量部をニーダー中に投入し、よく攪拌しながらヘキサメチレンジシラザン5重量部と水2.5重量部を添加し、加熱を行わずに1時間混合を行った。この後、温度を150℃に昇温し、引き続き2時間混合を行った後、室温まで降温した。このようにして得られた混合物100重量部に、(b)25

℃における粘度が $0.18\text{Pa}\cdot\text{s}$ の分子鎖両末端にケイ素原子に結合した水素原子を有するジメチルポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量 $=0.13$ 重量%)3.5重量部、(c)25℃における粘度が $0.15\text{Pa}\cdot\text{s}$ の分子鎖末端及び分子鎖側鎖にケイ素原子に結合した水素原子を有するメチルヒドロジェンポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量 $=0.38$ 重量%)1.4重量部、分子鎖両末端がトリメチルシリル基で封鎖された、25℃の粘度が約 $100\text{Pa}\cdot\text{s}$ のジメチルポリシロキサン5重量部、塩化白金酸とジビニルテトラメチルジシロキサンの錯体を白金金属として前記(a)、(b)及び(c)成分の合計量に対して30ppm、制御剤として1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン0.1重量部を添加し、よく攪拌した後、真空下で脱泡を行い、60℃で2時間かけて硬化させ、JIS K 6249に従ってシートを作製し、一般物性を測定した。また実施例1と同様に型取り耐久性を評価し、その結果を表1に示した。

【0027】

#### 実施例5

(a)分子鎖両末端がビニルジメチルシリル基で封鎖された25℃の粘度が約 $1\text{Pa}\cdot\text{s}$ のジメチルポリシロキサン100重量部、トリメチルシリル基で処理された比表面積 $120\text{m}^2/\text{g}$ の疎水性シリカ15重量部及び比表面積 $200\text{m}^2/\text{g}$ の湿式シリカ30重量部をニーダー中に投入し、よく攪拌しながらヘキサメチレンジシラザン5重量部と水2.5重量部を添加し、加熱を行わずに1時間混合を行った。この後、温度を150℃に昇温し、引き続き2時間混合を行った後、室温まで降温した。このようにして得られた混合物100重量部に、(b)25℃における粘度が $0.018\text{Pa}\cdot\text{s}$ の分子鎖両末端にケイ素原子に結合した水素原子を有するジメチルポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量 $=0.13$ 重量%)4.5重量部、(c)25℃における粘度が $0.01\text{Pa}\cdot\text{s}$ の分子鎖側鎖にケイ素原子に結合した水素原子を有するメチルヒドロジェンポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量 $=0.4$ 重量%)1.5重量部、塩化白金酸とジビニルテトラメチルジシロキサンの錯体を白金金属として前記(a)、(b)及び(c)成分の合計量に対して30ppm、制御剤として1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン0.1重量部を添加し、よく攪拌した後、真空下で脱泡を行い、60℃で2時間かけて硬化させ、JIS K 6249に従ってシート



を作製し、一般物性を測定した。また実施例 1 と同様に型取り耐久性を評価し、その結果を表 1 に示した。

## 【 0 0 2 8 】

## 実施例 6

(a) 分子鎖両末端がビニルジメチルシリル基で封鎖された 25℃ の粘度が約 5Pa・s のジメチルポリシロキサン 93 重量部、(a')  $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$  単位 39.5 モル%、 $(\text{CH}_3)_2(\text{CH}_2=\text{CH})\text{SiO}_{1/2}$  単位 6.5 モル%、 $\text{SiO}_2$  単位 54 モル% からなるオルガノポリシロキサン樹脂 7 重量部及びトリメチルシリル基で処理された比表面積  $120\text{m}^2/\text{g}$  の疎水性シリカ 25 重量部をニーダー中に投入し、よく攪拌しながらヘキサメチレンジシラザン 5 重量部と水 2.5 重量部を添加し、加熱を行わずに 1 時間混合を行った。この後、温度を 150℃ に昇温し、引き続き 2 時間混合を行った後、室温まで降温した。このようにして得られた混合物 100 重量部に、(b) 25℃ における粘度が 0.018Pa・s の分子鎖両末端にケイ素原子に結合した水素原子を有するジメチルポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量 = 0.13 重量%) 6 重量部、(c) 25℃ における粘度が 0.012Pa・s の分子鎖末端及び分子鎖側鎖にケイ素原子に結合した水素原子を有するメチルヒドロジェンポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量 = 0.48 重量%) 0.7 重量部、塩化白金酸とジビニルテトラメチルジシロキサンの錯体を白金金属として前記(a)、(a')、(b)及び(c)成分の合計量に対して 30ppm、制御剤として 1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン 0.1 重量部を添加し、よく攪拌した後、真空下で脱泡を行い、60℃ で 2 時間かけて硬化させ、JIS K 6249 に従ってシートを作製し、一般物性を測定した。また実施例 1 と同様に型取り耐久性を評価し、その結果を表 1 に示した。

## 【 0 0 2 9 】

## 比較例 1

(a) 分子鎖両末端がビニルジメチルシリル基で封鎖された 25℃ の粘度が約 1Pa・s のジメチルポリシロキサン 65 重量部、トリメチルシリル基で処理された比表面積  $120\text{m}^2/\text{g}$  の疎水性シリカ 20 重量部及び平均粒子径  $5\mu\text{m}$  の石英粉 15 重量部とをニーダー中に投入し、よく攪拌しながらヘキサメチレンジシラザン 5 重量部と水 2.5 重量部を添加し、加熱を行わずに 1 時間混合を行った。この後、温度を 150℃ に昇

温し、引き続き2時間混合を行った後、室温まで降温した。このようにして得られた混合物100重量部に、(b)25℃における粘度が $0.005\text{Pa}\cdot\text{s}$ の分子鎖両末端にケイ素原子に結合した水素原子を有するジメチルポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量=0.26重量%)0.67重量部、(c)25℃における粘度が $0.012\text{Pa}\cdot\text{s}$ の分子鎖末端及び分子鎖側鎖にケイ素原子に結合した水素原子を有するメチルハイドロジェンポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量=0.54重量%)1.84重量部、分子鎖両末端がトリメチルシリル基で封鎖された25℃の粘度が約 $100\text{Pa}\cdot\text{s}$ のジメチルポリシロキサン5重量部、塩化白金酸とジビニルテトラメチルジシロキサンの錯体を白金金属として前記(a)、(b)及び(c)成分の合計量に対して30ppm、制御剤として1,3,5,7-テトラメチル-1,3,5,7-テトラビニルシクロテトラシロキサン0.1重量部を添加し、よく攪拌した後、真空下で脱泡を行い、60℃で2時間かけて硬化させ、JIS K 6249に従ってシートを作製し、一般物性を測定した。また実施例1と同様に型取り耐久性を評価し、その結果を表2に示した。

## 【0030】

## 比較例2

実施例1において、平均粒子径 $5\mu\text{m}$ の石英粉を使用せずに調製したコンパウンド混合物100重量部に、(B)成分は使用せず、25℃における粘度が $0.012\text{Pa}\cdot\text{s}$  ( $12\text{mm}^2/\text{s}$ )の分子鎖末端及び分子鎖側鎖にケイ素原子に結合した水素原子を有するメチルハイドロジェンポリシロキサン(ケイ素原子結合水素原子含有量=0.54重量%)3.1重量部を使用した以外は実施例1に従って組成物を調製、硬化させてシートを作製し、一般物性を測定した。また実施例1と同様に型取り耐久性を評価し、その結果を表2に示した。

## 【0031】

【表 1】

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
硬さ (タイプ A)	35	38	40	38	25	20
せん断時伸び (%)	480	470	450	460	600	850
引張強さ (MPa・S)	5.4	5.3	4.9	5.3	7.0	5.0
引裂強さ (kN/m)	17	22	22	21	25	10
リニア一架構率 (%) *	37	46	49	46	49	70
型取り回数 (回)	65	70	70	70	75	65

\* (B)成分と(C)成分中のSiH基の合計に対する(B)成分中のSiH基の割合(モル%)

【0 0 3 2】

【表 2】

	比較例 1	比較例 2
硬さ (タイプ A)	40	40
せん断時伸び (%)	410	410
引張強さ (MPa・S)	5.0	5.0
引裂強さ (kN/m)	12	8
リニア一架構率 (%) *	15	-
型取り回数 (回)	45	30

\* (B)成分と(C)成分中のSiH基の合計に対する(B)成分中のSiH基の割合(モル%)

【0 0 3 3】

#### 【発明の効果】

本発明の型取り用オルガノポリシロキサン組成物は、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン樹脂、ポリエステル樹脂等に対する離型性に優れており、またせん断時伸び及び引裂強度にも優れていて、耐久性の良い型取り用の組成物として好適に使用できる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 各種の樹脂に対する離型性に優れた型取り用のオルガノポリシロキサン組成物を提供する。

【解決手段】 (A)一分子中に少なくとも2個のケイ素原子に結合したアルケニル基を有するオルガノポリシロキサン100重量部、(B)両末端にケイ素原子に結合した水素原子を有する直鎖状オルガノポリシロキサン、(C)1分子中に少なくとも3個のケイ素原子に結合した水素原子を有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン、(D)有効量のヒドロシリル化反応触媒、(E)比表面積が $50\text{m}^2/\text{g}$ 以上の微粉末シリカ50重量部以下、及び(F)非官能性ポリオルガノシロキサン0~20重量部を含有してなり、前記(B)成分と(C)成分中に存在するケイ素原子に結合した水素原子の合計量が、前記(A)成分中のアルケニル基1個当たり1~5個であり、(B)成分中のケイ素原子に結合した水素原子の数が、(B)成分と(C)成分中のケイ素原子に結合した水素原子の合計に対して20~70モル%である、型取り用オルガノポリシロキサン組成物。

【選択図】 なし

特 2 0 0 0 - 3 8 4 1 5 4

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 0 - 3 8 4 1 5 4
受付番号	5 0 0 0 1 6 3 1 2 9 4
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0 0 9 5
作成日	平成 1 2 年 1 2 月 1 9 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】 平成 12 年 12 月 18 日

次頁無

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 2 0 6 0 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 2 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区大手町二丁目 6 番 1 号
氏 名	信越化学工業株式会社